

05. 2. 2004

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2003年 1月 8日

出 願 番 号  
Application Number: 特願2003-002623  
[ST. 10/C]: [JP2003-002623]

出 願 人  
Applicant(s): 株式会社資生堂

REC'D 27 FEB 2004

WIPO

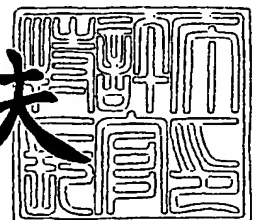
PCT

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年 1月14日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫



【書類名】 特許願  
【整理番号】 SS1600  
【提出日】 平成15年 1月 8日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 B32B 5/16  
B32B 7/00  
B32B 7/04  
B32B 19/00  
A61K 7/00

## 【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市都筑区早渕 2 丁目 2 番 1 号 株式会社資  
生堂 リサーチセンター（新横浜）内

【氏名】 秦 英夫

## 【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市都筑区早渕 2 丁目 2 番 1 号 株式会社資  
生堂 リサーチセンター（新横浜）内

【氏名】 勝山 智祐

## 【特許出願人】

【識別番号】 000001959

【氏名又は名称】 株式会社 資生堂

## 【代理人】

【識別番号】 100092901

## 【弁理士】

【氏名又は名称】 岩橋 祐司

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 015576

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9800935

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 水膨潤性粘土鉱物積層粉体及びこれを配合した化粧料

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 基盤となる粉体粒子表面上にイオン性官能基を 2 以上有するイオン性分子からなる層が積層され、その上に水膨潤性粘土鉱物からなる層が積層された積層粉体であって、各層における表面電荷又はイオン電荷が正負交互になるよう連続的に積層されていることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体。

【請求項 2】 請求項 1 に記載の水膨潤性粘土鉱物積層粉体において、イオン性分子が高分子電解質であることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体。

【請求項 3】 請求項 1 又は 2 に記載の水膨潤性粘土鉱物積層粉体において、水膨潤性粘土鉱物の一次粒子径が  $0.5 \mu\text{m}$  以下であることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体

【請求項 4】 請求項 1 から 3 の何れかに記載の水膨潤性粘土鉱物積層粉体において、基盤粉体の平均粒子径が  $0.1 \sim 1000 \mu\text{m}$  であることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体。

【請求項 5】 請求項 1 から 4 の何れかに記載の水膨潤性粘土鉱物積層粉体において、積層粉体最表面上に、該最表面の表面電荷又はイオン電荷に対して反対の電荷を有する機能性分子が吸着されていることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体。

【請求項 6】 請求項 5 に記載の水膨潤性粘土鉱物積層粉体において、積層粉体最表面が水膨潤性粘土鉱物であり、該最表面に存在する水膨潤性粘土鉱物表面のイオン交換基にカチオン性機能性分子が吸着されていることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体。

【請求項 7】 請求項 6 に記載の水膨潤性粘土鉱物積層粉体において、カチオン性機能性分子がアルキルアンモニウム塩であることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体。

【請求項 8】 請求項 6 又は 7 に記載の水膨潤性粘土鉱物積層粉体において、カチオン性機能性分子の吸着量が  $0.01 \sim 10$  質量%であることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体。

【請求項 9】 請求項 1 から 4 の何れかに記載の水膨潤性粘土鉱物積層粉体において、水膨潤性粘土鉱物が層間に異種分子がインターカレートされた水膨潤性粘土鉱物であることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体。

【請求項 10】 請求項 9 に記載の水膨潤性粘土鉱物積層粉体において、水膨潤性粘土鉱物が層間に多価アルコールがインターカレートされた水膨潤性粘土鉱物であることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体。

【請求項 11】 請求項 9 に記載の水膨潤性粘土鉱物積層粉体において、水膨潤性粘土鉱物が層間に水溶性高分子がインターカレートされた水膨潤性粘土鉱物であることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体。

【請求項 12】 請求項 11 に記載の水膨潤性粘土鉱物積層粉体において、水膨潤性粘土鉱物の層間に存在する水溶性高分子に有機色素が共吸着されていることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体。

【請求項 13】 請求項 1 から 4 の何れかに記載の水膨潤性粘土鉱物積層粉体において、水膨潤性粘土鉱物が有機色素と複合化された水膨潤性粘土鉱物であることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体。

【請求項 14】 基盤粉体粒子を、該粉体粒子表面の電荷と反対電荷のイオン性官能基を 2 以上有するイオン性分子の水溶液中に分散させ、該イオン性分子を粉体表面上に吸着させるイオン性分子吸着工程と、イオン性分子吸着後の粉体粒子を、該粉体粒子表面のイオン電荷と反対の電荷を有する水膨潤性粘土鉱物の水溶液中に分散させ、該水膨潤性粘土鉱物を粉体表面上に吸着させる水膨潤性粘土鉱物吸着工程と、を備えることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体の製造方法。

【請求項 15】 請求項 1 から 13 の何れかに記載の水膨潤性粘土鉱物積層粉体を含有することを特徴とする化粧料。

#### 【発明の詳細な説明】

#### 【0001】

#### 【発明の属する技術分野】

本発明は、新規な水膨潤性粘土鉱物積層粉体、及びこれを配合した化粧料、特に基盤粉体に対する機能性付与に関する。

## 【0002】

## 【従来の技術】

従来、基盤となる粉体の表面上に、異種の粉体粒子や、金属酸化物、有機化合物等を析出することにより、基盤粉体単体では得られない種々の機能性を付与した積層粉体が広く用いられている。例えば、薄片雲母上に二酸化チタンを積層することにより干渉色を発現するパール剤は、このような積層粉体の典型的な例である。

## 【0003】

一方で、水膨潤性粘土鉱物は、種々の有機化合物と複合体を形成することが知られている。すなわち、水膨潤性の粘土鉱物は、板状の結晶が積み重なり層間にイオンを有した構造をしているため、層間のイオンに分子を吸着させるか、又はこの層間のイオンを他の分子と交換（インターカレート）することによって、容易に複合体とすることができる。水膨潤性粘土鉱物の複合体としては、例えば、カチオン性色素、*n*-アルキルアミン塩等のカチオン性分子や、アルコール、ケトン、エーテル、ニトリル、水溶性高分子等の極性分子との複合体が知られている。このように、水膨潤性粘土鉱物は、種々の機能性分子との複合体を形成することによって、様々な機能を付与することが可能となる。

## 【0004】

そして、このような水膨潤性粘土鉱物を基盤粉体表面上に積層し、これを機能性分子接合の足場として用いることにより、粉体への機能付与の可能性が大きく広がると考えられる。しかしながら、粉体表面上に水膨潤性粘土鉱物を積層させた積層粉体については未だ報告されていない。

## 【0005】

また一方で、近年、盛んに研究されているL-b-L法においては、基盤となる物質と反対の電荷を有する物質を希釈水溶液または分散液中で、静電的な相互作用で連続吸着させることで、比較的簡便にして多層積層構造を構築できるということが知られている。この技術については、1966年にIlerによって反対電荷を有するコロイド粒子を用いて連続交互吸着が起こることが発見され（例えば、非特許文献1参照）、その後、1988年にMalloukらによって、 $Zr^{4+}$ とDiphosphonic acid

との交互吸着が報告され（例えば、非特許文献 2 参照）、さらにDecherらによって、高分子電解質を用いて多層膜フィルムを生成することが報告された（例えば、非特許文献 3 参照）。そして、これらの発見をきっかけにして、種々のイオン種や荷電したコロイド粒子の積層構造が、今までに報告されている。

#### 【0 0 0 6】

この中で、1994年には、Kleinfeldらによって高分子電解質と水膨潤性粘土鉱物をシリコンウエハー基板上に交互積層させた多層構造体が報告された（例えば、非特許文献 4 参照）。さらにその後、Lvovら、Kotovら、Van Duffelら、Rouseら、Kimらが、高分子電解質と水膨潤性粘土鉱物との積層体について報告している（例えば、非特許文献 5 ～ 9 参照）。

#### 【0 0 0 7】

##### 【非特許文献 1】

アイラー(Iler)、ジャーナル オブ コロイド アンド インターフェースサイエンス(JOURNAL OF COLLOID AND INTERFACE SCIENCE)、1 9 6 6 年、第 2 1 巻、p. 5 6 9 - 5 9 4

##### 【非特許文献 2】

マロウク(Mallouk)ら、ジャーナル オブ アメリカン ケミカル ソサエティ(JOURNAL OF AMERICAN CHEMICAL SOCIETY)、1 9 8 8 年、第 1 1 0 巻、p. 6 1 8 - 6 2 0

##### 【非特許文献 3】

デッカー(Decher)ら、シン ソリッド フィルム(Thin Solid Films)、1 9 9 4 年、第 2 4 4 巻、p. 7 7 2 - 7 7 7

##### 【非特許文献 4】

クラインフェルド(Kleinfeld)ら、サイエンス(SCIENCE)、1 9 9 4 年、第 2 6 5 巻、p. 3 7 0 - 3 7 3

##### 【非特許文献 5】

ルヴォフ(Lvov)ら、ラングミュアー(Langmuir)、1 9 9 6 年、第 1 2 巻、p. 3 0 3 8 - 3 0 4 4

##### 【非特許文献 6】

コトフ(Kotov)ら、ケミストリーマテリアルズ(Chemistry Materials)、1998年、第10巻、p. 886-895

【非特許文献7】

ヴァンドゥフェル(Van Duffel)ら、ラングミュアー(Langmuir)、1999年、第15巻、p. 7520-7529

【非特許文献8】

ラウズ(Rouse)ら、ケミストリーマテリアルズ(Chemistry Materials)、2000年、第12巻、p. 2502-2507

【非特許文献9】

キム(Kim)ら、ケミストリーマテリアルズ(Chemistry Materials)、2001年、第13巻、p. 243-246

【0008】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、これらの高分子電解質と水膨潤性粘土鉱物との多層構造体はすべてシリコンウエハーやマイカなどの基板(cmオーダー)を浸漬するなどの方法で調製されているものであって、粉体を基盤として、粉体表面上に水膨潤性粘土鉱物を積層させた物質はこれまでに報告されていない。

すなわち、本発明は、前述したような現状の課題に鑑み行われたものであり、その目的は、基盤となる粉体表面上に水膨潤性粘土鉱物を積層することによって、粉体表面上への機能性の付与が容易な水膨潤性粘土鉱物積層粉体、及びこれを配合した化粧料を提供することにある。

【0009】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、前述したような現状に鑑み、静電的相互作用を利用して粉体表面上に水膨潤性粘土鉱物を積層した積層粉体を調製する目的で、鋭意研究を行った結果、基盤粉体粒子表面上にイオン性官能基を2以上有するイオン性分子を吸着させることにより、粉体表面の電荷密度を高めるとともに、粉体表面の電荷の正負をコントロールし、さらにこの粉体表面上のイオン電荷と反対の電荷を有する水膨潤性粘土鉱物を吸着させることによって、基盤粉体上に水膨潤性粘土鉱物



が安定に積層された積層粉体が見出され、本発明を完成するに至った。また、この方法によれば、粉体に積層された水膨潤性粘土鉱物表面への機能性分子の吸着や、水膨潤性粘土鉱物層間への機能性分子のインターカレートを行うことによって、粉体への新たな機能の付与を容易に行うことが可能となる。

#### 【0 0 1 0】

すなわち、本発明の第一の主題は、基盤となる粉体粒子表面上にイオン性官能基を2以上有するイオン性分子からなる層が積層され、その上に水膨潤性粘土鉱物からなる層が積層された積層粉体であって、各層における表面電荷又はイオン電荷が正負交互になるよう連続的に積層されていることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体である。

#### 【0 0 1 1】

また、前記積層粉体において、イオン性分子が高分子電解質であることが好適である。また、前記積層粉体において、水膨潤性粘土鉱物の一次粒子径が0.5  $\mu\text{m}$ 以下であることが好適である。また、前記積層粉体において、基盤粉体の平均粒子径が0.1~1000  $\mu\text{m}$ であることが好適である。また、前記積層粉体において、積層粉体最表面上に、該最表面に存在する水膨潤性粘土鉱物表面又はイオン性分子の電荷に対して反対の電荷を有する機能性分子が吸着されていることが好適である。また、前記積層粉体において、積層粉体最表面が水膨潤性粘土鉱物であり、該最表面に存在する水膨潤性粘土鉱物表面のイオン交換基にカチオン性機能性分子が吸着されていることが好適である。また、前記積層粉体において、カチオン性機能性分子がアルキルアンモニウム塩であることが好適である。また、前記積層粉体において、カチオン性機能性分子の吸着量が0.01~10%であることが好適である。

#### 【0 0 1 2】

また、前記積層粉体において、水膨潤性粘土鉱物が層間に異種分子がインターカレートされた水膨潤性粘土鉱物であることが好適である。また、前記積層粉体において、水膨潤性粘土鉱物が層間に多価アルコールがインターカレートされた水膨潤性粘土鉱物であることが好適である。また、前記積層粉体において、水膨潤性粘土鉱物が層間に水溶性高分子がインターカレートされた水膨潤性粘土鉱物

であることが好適である。また、前記積層粉体において、水膨潤性粘土鉱物の層間に有機色素が共吸着されていることが好適である。また、前記積層粉体において、水膨潤性粘土鉱物が有機色素と複合化された水膨潤性粘土鉱物であることが好適である。

#### 【0013】

また、本発明の第二の主題は、基盤粉体粒子を、該粉体粒子表面の電荷と反対電荷のイオン性官能基を2以上有するイオン性分子の水溶液中に分散させ、該イオン性分子を粉体表面上に吸着させるイオン性分子吸着工程と、イオン性分子吸着後の粉体粒子を、該粉体粒子表面のイオン電荷と反対の電荷を有する水膨潤性粘土鉱物の水溶液中に分散させ、該水膨潤性粘土鉱物を粉体表面上に吸着させる水膨潤性粘土鉱物吸着工程と、を備えることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体の製造方法である。

また、本発明の第三の主題は、前記水膨潤性粘土鉱物積層粉体を含有することを特徴とする化粧料である。

#### 【0014】

##### 【発明の実施の形態】

以下に、本発明の好適な実施形態について説明するが、本発明はこれにより制限されるものではない。

なお、本発明は、任意の基盤粉体表面上に水膨潤性粘土鉱物を均一に積層することにより基盤粉体に新たな機能性を付与し、更に積層された粘土鉱物を足場としてさらに表面に機能性分子を吸着させるか、又は積層された粘土鉱物の層間に機能性分子をインターカレートさせることにより、優れた機能性を付与することのできる水膨潤性粘土鉱物積層粉体を提供するものである。

#### 【0015】

本発明にかかる水膨潤性粘土鉱物積層粉体は、静電的相互作用を利用して基盤粉体上に水膨潤性粘土鉱物及びイオン性分子を積層するものであるが、粉体に限らず固体表面は一般的に水溶液中で正又は負の電荷を帯びているものである。このため、本発明に用いられる基盤粉体はその種類により特に限定されるものではなく、本発明の効果を損なわない範囲で任意の粉体を使用することができる。本

発明に用いられる基盤粉体の例としては、具体的には、タルク、カオリン、雲母、絹雲母（セリサイト）、白雲母、金雲母、合成雲母、紅雲母、黒雲母、リチア雲母、バーミキュライト、焼成雲母、焼成タルク、焼成セリサイトなどの焼成粘土鉱物、炭酸マグネシウム、炭酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸バリウム、ケイ酸カルシウム、ケイ酸マグネシウム、ケイ酸ストロンチウム、タングステン酸金属塩、マグネシウム、シリカ、ゼオライト、ガラス、硫酸バリウム、焼成硫酸カルシウム（焼セッコウ）、リン酸カルシウム、フッ素アパタイト、ヒドロキシアパタイト、セラミックパウダー、金属石鹸（ミリスチン酸亜鉛、パルミチン酸カルシウム、ステアリン酸アルミニウムなど）、窒化ホウ素グラファイト等の無機粉末；PMMA、シリコーン樹脂パウダー、ナイロンパウダー、シルクパウダー、ウールパウダー、ウレタンパウダー、PTFE等の有機粉末；二酸化チタン、酸化亜鉛等の無機白色系顔料；酸化鉄（ベンガラ）、チタン酸鉄等の無機赤色系顔料； $\gamma$ -酸化鉄等の無機褐色系顔料；黄酸化鉄、黄土等の無機黄色系顔料；黒酸化鉄、カーボンブラック、低次酸化チタン等の無機黒色系顔料；マンガンバイオレット、コバルトバイオレット等の無機紫色系顔料；酸化クロム、水酸化クロム、チタン酸コバルト等の無機緑色系顔料；群青、紺青等の無機青色系顔料；酸化チタン被覆マイカ、酸化チタン被覆オキシ塩化ビスマス、酸化チタン被覆タルク、着色酸化チタン被覆マイカ、オキシ塩化ビスマス、魚鱗箔等の無機パール顔料；アルミニウムパウダー、銅パウダー等の金属粉末顔料；赤色201号、赤色202号、赤色204号、赤色205号、赤色220号、赤色226号、赤色228号、赤色405号、橙色203号、橙色204号、黄色205号、黄色401号、青色404号等の有機顔料；赤色3号、赤色104号、赤色106号、赤色227号、赤色230号、赤色401号、赤色505号、橙色205号、黄色4号、黄色5号、黄色202号、黄色203号、緑色3号、青色1号等のジルコニウムレーキ、バリウムレーキ、アルミニウムレーキ等の有機レーキ顔料；クロロフィル、 $\beta$ -カロチン等の天然色素等が挙げられる。また、本発明に用いられる基盤粉体としては、平均粒子径が0.1～1000 $\mu$ mのものが好適である。

【0016】

本発明で用いられる水膨潤性粘土鉱物としては、特に制限されるものではないが、例えば、水膨潤性粘土鉱物の一例としてスメクタイト属の層状ケイ酸塩鉱物が挙げられる。これらスメクタイト属の層状ケイ酸塩鉱物とは、具体的には、モンモリロナイト、バイデライト、ノントロナイト、サポナイト、ヘクトライト等であり、天然、合成の何れのものも本発明に用いることができる。市販の水膨潤性粘土鉱物としては、例えば、クニピア、スメクトン（クニミネ工業社製）ビーガム（バンダービルト社製）、ラポナイト（ラポルテ社製）、フッ素四珪素雲母などが挙げられる。本発明においては、水膨潤性粘土鉱物として、これらのスメクタイト属の層状ケイ酸塩の内から1種又は2種以上を任意に選択することができる。本発明に用いる水膨潤性粘土鉱物としては、一次粒子が細かいものがより望ましく、一次粒子径が $0.5\mu\text{m}$ 以下のものが好適であり、さらには一次粒子径が $20\text{nm}$ 前後のラポナイトが最も好適である。任意の基盤粉体表面上に上記水膨潤性粘土鉱物を積層する際には、上記水膨潤性粘土鉱物をゲル化しない程度の濃度で水中に分散させた分散液の状態で使用する。

#### 【0017】

本発明で用いられるイオン性分子とは、2以上のイオン性官能基を有するものであり、このようなものであれば特に制限されることなく用いられることができる。本発明に用いられるイオン性分子としては、基盤表面上への吸着強度の観点から、高分子電解質が特に好適である。高分子電解質とは、通常、高分子鎖の構成成分あるいは置換基にイオン性を有する官能基を有する高分子であり、高分子電解質としては、このようなものであれば、特に制限されることなく本発明に用いられることができるが、特に直鎖状及び/あるいは水溶性高分子電解質であることが望ましい。

#### 【0018】

高分子電解質は、イオン性官能基の種類によって、ポリ酸およびポリ塩基に分類することができる。ポリ酸は電離すると、プロトンを解離してポリアニオンを生じる。ポリ酸の例としては、ポリリン酸、ポリビニルあるいはポリスチレン硫酸、ポリビニルあるいはポリスチレンスルホン酸、ポリビニルカルボン酸等が挙げられる。それぞれの塩の例としては、ポリフォスフェート、ポリスルフェート

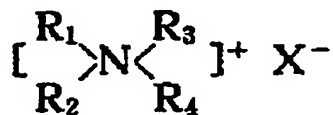
、ポリスルホネート、ポリホスホネート、ポリアクリレート、ポリカルボネートである。また、ポリ塩基の例としては、ポリエチレンアミン、ポリビニルアミン、ポリビニルピリジンなどのポリアミンや、ポリジメチルジアリルアンモニウムクロライド (PDDA) などのポリアンモニウム塩等が挙げられる。任意の基盤粉体表面上に上記イオン性分子を積層する際には、上記イオン性分子を適当な濃度で水中に分散させた分散液の状態で使用する。

#### 【0019】

本発明において、基盤となる粉体表面上に積層した水膨潤性粘土鉱物に吸着させる機能性分子としては、一般的に水膨潤性粘土鉱物は負電荷を有している場合が多いため、反対の正電荷を有しているもの、例えばカチオン性の官能基を有する機能性分子を好適に用いることができる。このようなカチオン性機能性分子としては、例えば、テトラアルキルアンモニウム塩やパーフルオロアルキルアンモニウム塩等が挙げられる。特に好ましくは下記一般式化1で示されるテトラアルキルアンモニウム塩が挙げられる。また、本発明において、カチオン性機能性分子の吸着量は、0.01～10質量%が好適である。

#### 【0020】

##### 【化1】



(式中、Xは塩素原子又は臭素原子であり、R<sub>1</sub>は炭素原子10～22個の直鎖アルキル基であってR<sub>2</sub>とR<sub>3</sub>とR<sub>4</sub>とは炭素原子1～10個の直鎖アルキル基であるか、あるいはR<sub>1</sub>とR<sub>2</sub>とは炭素原子10～22個の直鎖アルキル基であってR<sub>3</sub>とR<sub>4</sub>とは炭素原子1～10個の直鎖アルキル基である。)

#### 【0021】

本発明において、水膨潤性粘土鉱物にインターカレートされる異種分子としては、機能性付与の観点から、例えば、水溶性高分子、多価アルコールを好適に用いることができる。

#### 【0022】

本発明において、水膨潤性粘土鉱物の層間にインターカレートさせる水溶性高分子としては、例えば、ポリビニルアルコール（PVA）、ポリビニルピロリドン（PVP）、ポリエチレングリコール（PEG）、ヒアルロン酸やキトサン等の多糖類、ポリジメチルジアリルアンモニウムクロライド（PDDA）等のポリ塩基に属するものが挙げられる。また、各種水溶性高分子の重合度は種々のものがあるが、本発明においては何れの場合も特に制限されることなく用いることができる

#### 【0023】

本発明において、水膨潤性粘土鉱物の層間にインターカレートさせる多価アルコールとしては、例えば、グリセリン、ジプロピレングリコール、1-3-ブチレングリコール等が挙げられる

#### 【0024】

本発明において用いられる有機色素としては、水膨潤性粘土鉱物と複合化可能なもの、又は予め水膨潤性粘土鉱物層間にインターカレートされた水溶性高分子中に共吸着可能なものであれば、何れもその対象となる。このような有機色素としては、例えば、食用黄色4号（Tartrazine）、黄色5号（Sunset Yellow FCF）、黄色203号（Quinoline Yellow WS）、青色1号（Brilliant Blue FCF）、赤色3号（Erythrosine）、赤色401号（Violamine R）、赤色213号（Rhodamine B）、紫色201号（Alizurine Purple SS）、赤色225号（Sudan II）カルミン酸、ラツカイン酸、カルサミン、シコニン、クロロフィリン類等が挙げられる。これらの中で、紫色201号や赤色225号の様な脂溶性色素の場合は、水溶性高分子との共吸着には向いていないため、水膨潤性粘土鉱物との複合化においてのみ用いることができる。

#### 【0025】

また、本発明にかかる化粧料においては、必須成分である前記積層粉体の他に、通常化粧料や医薬品に用いられる成分を、本発明の効果を損なわない範囲で配合することができる。例えば、油分としては、ジメチルポリシロキサン、環状ジメチルポリシロキサン、メチルフェニルポリシロキサン等のシリコーン油、スクワラン、流動パラフィン、軽質イソパラフィン、ワセリン、マイクロクリスタリンワックス、オゾケライト、セレシン等の各種炭化水素油、ミリスチン酸、パル

ミチン酸、ステアリン酸、オレイン酸、イソステアリン酸、ベヘン酸等の高級脂肪酸、セチルアルコール、ステアシルアルコール、オレイルアルコール、バチルアルコール等の高級アルコール、セチル-2-エチルヘキサノエート、2-エチルヘキシルパルミテート、2-オクチルドデシルミリステート、ネオペンチルグリコール-2-エチルヘキサノエート、トリオクタン酸グリセリド、2-オクチルドデシルオレート、イソプロピルミリステート、ミリスチルミリステート、トリイソステアリン酸グリセリド、トリオレイン酸グリセリド、トリヤシ油脂肪酸グリセリド等のエステル類、オリーブ油、アボガド油、ホホバ油、ヒマワリ油、サフラワー油、椿油、シア脂、マカデミアナッツ油、ミンク油、ラノリン、酢酸ラノリン、液状ラノリン、ヒマシ油等の油脂、モクロウ等のロウ類、パーフルオロポリエーテル、パーフルオロカーボン等のフッ素系油分等が挙げられる。その他、トリメチルシロキシケイ酸、MDQレジン等のシリコーンレジン、高分子シリコーンゴム、アクリル変性シリコーン共重合体等の皮膜剤高分子、界面活性剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤、塩類、防腐剤、増粘剤、保湿剤、香料の他、ビタミン、ホルモン、美白剤、消炎剤等の薬剤等が挙げられる。

#### 【0026】

本発明の化粧料の使用用途は、必須成分である上記積層粉体を含有する化粧料であれば、特に限定されるものではないが、例えば、油性ファンデーション、乳化ファンデーション、パウダリーファンデーション、両用ファンデーション、おしろい、頬紅、プレストパウダー、チークカラー、口紅、アイライナー、マスカラ、アイシャドー等のメーキャップ化粧料や、乳液、ローション、クリーム、サンスクリーン、化粧下地等のスキンケア化粧料が挙げられる。

#### 【0027】

##### 【実施例】

以下に本発明の好適な実施例を挙げて説明するが、これにより本発明の技術的範囲は限定されるものではない。なお、配合量は特に断りのない限り質量%で示す。

##### 1. 水膨潤性粘土鉱物積層粉体の調製

本発明者らは、まず最初に、合成フッ素金雲母上に、高分子電解質としてポリ

ジアリルジメチルアンモニウムクロライド (PDPA)、ポリスチレンスルホン酸ナトリウム (PSS)、水膨潤性粘土鉱物としてラポナイトを用い、それぞれの表面電荷又はイオン電荷が正負交互となるような積層粉体の調製を試み、生成物についての評価、検討を行った。

#### 【0028】

##### 実施例 1. ラポナイト/PDPA/合成フッ素金雲母積層粉体

負に荷電している平均粒子径 $30\mu\text{m}$ の合成フッ素金雲母 (トピー工業社製) を、カチオン性の高分子電解質であるポリジアリルジメチルアンモニウムクロライド (PDPA) (Aldrich製 MW: <200000) 1%水溶液中に浸漬させることにより、PDPAをフッ素金雲母上に吸着させ、PDPA/合成フッ素金雲母積層粉体を調製した。なお、得られた積層粉体は、PDPA吸着後、水で十分に洗浄した。

#### 【0029】

つづいて、負に荷電している水膨潤性粘土鉱物であるラポナイトXLG (ラポルテ社製) をゲル化しない程度の濃度 (<2%) で水中に分散させ、透明な分散液が得られるまで、攪拌混合しラポナイト水分散液を調整した。

得られたラポナイト水分散液中に、上記PDPA/合成フッ素金雲母積層体を、ラポナイト:PDPA/合成フッ素金雲母積層体の質量比が1:1の割合となるようにして加え、攪拌混合し、その後、ろ過、洗浄、乾燥を行い、ラポナイト/PDPA/合成フッ素金雲母積層粉体を得た。

#### 【0030】

##### 実施例 2. ラポナイト/PDPA/PSS/PDPA/合成フッ素金雲母積層粉体

実施例 1 と同様にして、PDPAをフッ素金雲母上に吸着させて得られたPDPA/合成フッ素金雲母積層粉体を、アニオン性の高分子電解質であるポリスチレンスルホン酸ナトリウム (PSS) (Aldrich製 MW: 70000) 1%水溶液に浸漬させることによって、粉体表面にPSSを吸着させ、さらに上記PDPAの吸着操作を再び行うことによって、PDPA/PSS/PDPA/合成フッ素金雲母積層粉体を調整した。なお、得られた積層粉体は、各高分子電解質を吸着後、水で十分に洗浄してから、次の操作を行った。

#### 【0031】



つづいて、実施例 1 と同様にして得られたラポナイト水分散液中に、上記 PDDA/PSS/PDDA/合成フッ素金雲母積層粉体をラポナイト:PDDA/PSS/PDDA/合成フッ素金雲母積層粉体の質量比が1:1の割合となるようにして加え、攪拌混合し、その後、ろ過、洗浄、乾燥を行い、ラポナイト/PDDA/PSS/PDDA/合成フッ素金雲母積層粉体を得た。

#### 【0032】

以上のようにして得られた実施例 1, 2 の各積層粉体について、CHN元素分析、 $\zeta$  電位測定、DFM測定により、評価を行った。なお、各評価における分析及び測定に際し、用いた装置及び条件は以下の通りである。

#### 【0033】

CHN元素分析: 2400II CHNS/O (パーキンエルマー社製)

$\zeta$  電位測定: LEZA60 (大塚電子社製) 移動相溶媒: 0.1M NaCl水溶液

DFM測定: SPA400/3800N (セイコーインスツルメント社製)

カンチレバー: DF-20 (セイコーインスツルメント社製) (SiN製 ばね乗数: 20N/m)

#### 【0034】

実施例 1、2 の積層粉体の各処理段階における、CHN元素分析により得られたC%、及び $\zeta$  電位を表 1 に、実施例 1 の積層粉体の各処理段階におけるDFM像を図 1～3 に示す。

【表 1】

	C% n : 2	ζ 電位/mV
合成フッ素金雲母	0	-26.1
PDDA/合成フッ素金雲母	0.40	+28.2
PSS/PDDA/合成フッ素金雲母	0.78	-32.2
PDDA/PSS/PDDA/合成フッ素金雲母	1.22	+30.1
ラポナイト/PDDA/合成フッ素金雲母 (実施例 1)	0.40	-13.2
ラポナイト/PDDA/PSS/PDDA/合成フッ 素金雲母 (実施例 2)	1.21	-15.2

## 【0035】

表 1 の CHN 元素分析の結果に示されるように、PDDA 吸着後、PSS/PDDA 吸着後、PDDA/PSS/PDDA 吸着後の何れの場合も炭素量は増大しており、高分子電解質が吸着していることが確認された。また、ラポナイト処理後は、処理前と比較して炭素量はほとんど変化していないことから、ラポナイト処理に際して高分子電解質の脱着が起こっていないことが確認された。

## 【0036】

また、表 1 の ζ 電位測定結果に示されるように、未処理の合成フッ素金雲母表面の ζ 電位は -26mV 程度であり、表面は負に帯電している。これに対して、PDDA/合成フッ素金雲母では表面がポリカチオンで覆われるため、表面の ζ 電位は +28mV 程度となり表面が正に帯電している。さらに、ラポナイト/PDDA/合成フッ素金雲母では表面の ζ 電位は -13mV 程度に変化しており、表面電位が負であるラポナイトが積層されていることが確認される。同様にラポナイト/PDDA/PSS/PDDA/合成フッ素金雲母においても、表面 ζ 電位は -15mV 程度であり、表面がラポナイトで積層されていることが確認される。

## 【0037】

図 1～3 に示されているように、DFM 測定による各種粉体の表面形状観察を行ったところ、未処理の合成フッ素金雲母 (図 1) と、PDDA/合成フッ素金雲母 (

図2)の表面の形状に大きな違いは無い。一方で、ラポナイト/PDDA/合成フッ素金雲母(図3)では、表面が20~40nm程度の粒子で隙間無く覆われていることが確認された。また、高さ方向のラフネスも5~10nm程度であり、凹凸無く非常に均一に積層されていることがわかる。なお、ラポナイト/PDDA/PSS/PDDA/合成フッ素金雲母に関しても、同様のDFM像が観察された。これにより、基盤となる粉体の表面状が水膨潤性粘土鉱物により均一に覆われた、新規な水膨潤性粘土鉱物積層粉体が調製されたことが確認された。

### 【0038】

#### 2. 積層粉体上へのカチオン性機能性分子の吸着

つづいて、本発明者らは、カチオン性機能分子としてジメチルジステアリルアンモニウムクロリド(2C18)を用い、上記のようにして得られた積層粉体表面上への吸着を試み、生成物についての評価、検討を行った。

### 【0039】

#### 実施例3 2C18/ラポナイト/PDDA/合成フッ素金雲母

実施例1のラポナイト/PDDA/合成フッ素金雲母を、80℃に加温した5mMジメチルジステアリルアンモニウムクロライド(2C18)水溶液中に添加(質量比でラポナイト/PDDA/合成フッ素金雲母:2C18=50:1)し、1時間攪拌混合した。その後、80℃の水にて水洗した後、ろ過、乾燥を行い2C18/ラポナイト/PDDA/合成フッ素金雲母を得た。

### 【0040】

以上のようにして得られた実施例3の積層粉体に関して、CHN元素分析、水接触角測定、化粧品専門パネルによる官能評価を、積層粉体単体で、及びそれを配合したパウダリーファンデーションの系で行った。パウダリーファンデーションの配合処方を表3に、粉体単体及び化粧料配合時の評価結果を表2及び表4に示す。なお、官能評価の評価内容は以下の通りである。

### 【0041】

滑らかさ・のび: 20名の女性パネラーに試料を塗布し、滑らかさ及びのび感について評価した。

◎ 17名以上が良いと回答

○ 12名～16名

△ 9名～11名

× 5名～8名

×× 4名以下

## 【0042】

化粧持続性：20名の女性パネラーに試料を塗布し、化粧料持続性について評価した。

◎ 17名以上が良いと回答

○ 12名～16名

△ 9名～11名

× 5名～8名

×× 4名以下

## 【0043】

## 粉体単体評価

【表2】

	C%	水接触角	滑らかさ・のび
合成フッ素金雲母	0%	測定不能 (< 5°)	△
ラポナイト/PDDA/合成フッ素金雲母 (実施例1)	0.4%	測定不能 (< 5°)	△
2C18/ラポナイト/PDDA/合成フッ素金雲母 (実施例3)	1.44%	55.3°	◎

## 【0044】

【表3】

## パウダリーファンデーション

	配合例1	比較例1
2C18/ラポナイト/PDDA/合成フッ素金雲母	40	—
合成フッ素金雲母	—	40
タルク	T0 100	T0 100
二酸化チタン	10.5	10.5

微粒子二酸化チタン	5	5
酸化鉄赤	0.8	0.8
酸化鉄黄	2	2
酸化鉄黒	0.1	0.1
球状ナイロンパウダー	3	3
球状PMMAパウダー	5	5
流動パラフィン	4	4
ワセリン	4	4
ソルビタンセスキイソステアレート	0.8	0.8
パラベン	適量	適量
酸化防止剤	適量	適量
香料	適量	適量

(製法) 処方中の粉末成分と油相成分をヘンシェルミキサーにて混合し、パルペライザーで2回粉碎した後、容器(樹脂製中皿)内に充填し、公知の方法で乾式プレス成型した。

#### 【0045】

#### 化粧品配合評価

【表4】

	滑らかさ・のび	化粧持続性
配合例1	◎	○
比較例1	△	△

上記表2より、2C18による表面処理前後で、CHN元素分析より得られたC%の値が1%程度増加していた。また、水接触角測定からは、表面処理前では粉末表面が親水性を示しているが、2C18による表面処理後では、撥水性を示していた。これらのことから、ラポナイトが均一被覆されていることにより、負電荷及びカチオン交換サイトを有している表面に、カチオン性の機能性分子であるジメチルジステアリルアンモニウムが吸着していることが確認された。また、化粧品専門パネルによる粉体単体の評価では、2C18処理後では、処理前と比較して、すべり

感や滑らかさが改善されていることがわかった。また、上記表4より、ファンデーションの系での評価でも、配合実施例1は比較配合例1と比較して、すべり感や滑らかさが向上しており、また表面が撥水性を示すことに起因すると考えられる化粧もち持続効果も向上した。

#### 【0046】

### 3. 水溶性高分子及び多価アルコールをインターカレートした水膨潤性粘土鉱物積層粉体

さらに、本発明者らは、機能性分子として、水溶性高分子であるポリビニルピロリドン (PVP)、及び多価アルコールであるグリセリンをインターカレートした水膨潤性粘土鉱物を調製し、これらを用いて前記実施例と同様に積層粉体の調製を試み、生成物についての評価、検討を行った。

#### 【0047】

#### PVP／ラポナイト複合粉体

水膨潤性粘土鉱物のひとつであるラポナイトXLG (ラポルテ社製) をゲル化しない程度の濃度 (<2%) で水中に分散させ、透明な分散液が得られるまで、攪拌混合しラポナイト水分散液を調整した。この分散液に水溶性高分子のひとつであるポリビニルピロリドン (TCI製、分子量: 10000) の5%水溶液を重量比でラポナイト:PVP=1:2になるように添加し、30分間攪拌し、遠心分離、水洗、室温乾燥した後、PVP/ラポナイト複合体を得た。

#### 【0048】

#### グリセリン／ラポナイト複合粉体

多価アルコールであるグリセリンを用い、上記PVP/ラポナイト複合粉体と同様にしてグリセリン/ラポナイト複合体を得た。

#### 【0049】

なお、以上のようにして得られたPVP/ラポナイト複合粉体、及びグリセリン／ラポナイト複合粉体について、PVP又はグリセリンがラポナイト層間にインターカレートされているかどうか、XRD測定による確認を行った。

#### ・XRD測定

ラポナイトXLGのXRD測定より、ラポナイトの(001)に起因する回折ピークが1

4.5 Åに見られたのに対して、PVP/ラポナイトのXRD測定では、(001)に起因するピークが29.0 Åに見られた。このことから、ラポナイトの基本面間隔が約14.5 Å広がっており、ラポナイトの層間にPVPがインターカレートしていることが確認された。同様に、グリセリン/ラポナイトに関しても、基本面間隔が約4.0 Å広がっており、グリセリンがラポナイト層間にインターカレートしていることが確認された。

#### 【0050】

##### 実施例 4 (PVP/ラポナイト)/PDPA/白雲母

基盤粉体として白雲母を用い、実施例 1 と同様にして、10%のPDPA水溶液中に白雲母を重量比でPDPA:白雲母=10:1になるような割合で添加し、攪拌混合後、ろ過洗浄を行いPDPA/白雲母を得た。なお、得られた白雲母は、CHN元素分析よりC%が0.45%となり、 $\zeta$  電位は+38mVとなり、白雲母表面を十分な量のPDPAが吸着していることを確認した。このPDPA/白雲母を、上記PVP/ラポナイト複合粉体がゲル化しない程度の濃度に調整した水分散体に添加し、攪拌混合後、ろ過、水洗を行い、(PVP/ラポナイト)/PDPA/白雲母を得た。

#### 【0051】

##### 実施例 5 (グリセリン/ラポナイト)/PDPA/白雲母

実施例 4 と同様にして、上記グリセリン/ラポナイト複合粉体を用い、(グリセリン/ラポナイト)/PDPA/白雲母を得た。

#### 【0052】

以上のようにして得られた(PVP/ラポナイト)/PDPA/白雲母、及び(グリセリン/ラポナイト)/PDPA/白雲母複合体に関して、化粧品専門パネルによる官能評価を、それらを配合したパウダリーファンデーションの系で行った。配合処方を表5に、評価結果を表6に示す。なお、官能評価の評価内容は以下の通りである。

#### 【0053】

しっとり感・滑らかさ：20名の女性パネルに試料を塗布し、しっとり感、滑らかさについて評価した。

◎ 17名以上が良いと回答

○ 12名～16名

△ 9名～11名

× 5名～8名

×× 4名以下

【0054】

【表5】

	配合例 2	配合例 3	比較例 2
(PVP/ラボ <sup>®</sup> ナイト)/PDDA/白雲母	4 0	—	—
(グリセリン/ラボ <sup>®</sup> ナイト)/PDDA/白雲母	—	4 0	—
白雲母	—	—	4 0
タルク	TO 1 0 0	TO 1 0 0	TO 1 0 0
二酸化チタン	1 0 . 5	1 0 . 5	1 0 . 5
微粒子二酸化チタン	5	5	5
酸化鉄赤	0 . 8	0 . 8	0 . 8
酸化鉄黄	2	2	2
酸化鉄黒	0 . 1	0 . 1	0 . 1
球状ナイロンパウダー	3	3	3
球状シリコーンパウダー	5	5	5
流動パラフィン	4	4	4
ジメチコン	4	4	4
ソルベタンセスキイソステアレート	0 . 8	0 . 8	0 . 8
パラベン	適 量	適 量	適 量
酸化防止剤	適 量	適 量	適 量
香料	適 量	適 量	適 量

(製法) 処方中の粉末成分と油相成分をヘンシェルミキサーにて混合し、パールペライザーで2回粉碎した後、容器(樹脂製中皿)内に充填し、公知の方法で乾式プレス成型した。

【0055】

評価結果



【表 6】

	しっとり感・滑らかさ
配合例 2	○
配合例 3	○
比較例 2	×

以上の結果より、予め水膨潤性粘土鉱物層間に水溶性高分子や多価アルコールをインターカレートさせた複合体を基板となる粉体上に積層することにより、これを化粧料に配合した場合に、しっとり感、滑らかな感触を付与することが可能となることが見出された。

## 【0056】

#### 4. 有機色素/水膨潤性粘土鉱物複合体、及び有機色素/水溶性高分子/水膨潤性粘土鉱物複合体積層粉体

つづいて、本発明者らは、水膨潤性粘土鉱物に予め有機色素を複合化した複合体、及び水膨潤性粘土鉱物層間に水溶性高分子をインターカレートしさらに有機色素を共吸着させた複合体を調整し、これらを用いて前記実施例と同様に積層粉体の調製を試み、生成物についての評価、検討を行った。

## 【0057】

#### 有機色素/水膨潤性粘土鉱物複合粉体

##### スダンIII/ラポナイト複合粉体

スダンIIIトルエン溶液（0.2%）10mlに水膨潤性粘土鉱物のひとつであるラポナイトXLG（ラポルテ社製）を3g加え、攪拌混合した後、遠心分離、減圧乾燥後、スダンIII/ラポナイト複合体を得た。得られた粉末は赤色を呈していた。

## 【0058】

##### ビオラミンR/ラポナイト複合粉体

ビオラミンRエタノール溶液（0.05%）20mlにラポナイトXLG（ラポルテ社製）を3g加え、攪拌混合した後、遠心分離、減圧乾燥後、ビオラミンR ラポナイト複合体を得た。得られた粉末は赤色を呈していた。

## 【0059】

アリズリンパープル/ラポナイト複合粉体

アリズリンパープルエタノール溶液 (0.07%) 10ml にラポナイト XLG (ラポルテ社製) を 3g 加え、攪拌混合した後、遠心分離、減圧乾燥後、アリズリンパープル/ラポナイト複合体を得た。得られた粉末は青紫色を呈していた。

【0060】

クロロフィルa/ラポナイト複合粉体

クロロフィルaトルエン溶液 (2%) 10ml にラポナイト XLG (ラポルテ社製) を 3g 加え、攪拌混合した後、遠心分離、減圧乾燥後、クロロフィルa/ラポナイト複合体を得た。得られた粉末は緑色を呈していた。

【0061】

有機色素/水溶性高分子/水膨潤性粘土鉱物複合粉体ビオラミンR/PVP/ラポナイト複合粉体

ビオラミンRエタノール溶液 (0.05%) 20ml に上記PVP/ラポナイトを 3g 加え、攪拌混合した後、遠心分離、減圧乾燥後、ビオラミンR/PVP/ラポナイト複合体を得た。得られた粉末は赤色を呈していた。

なお、脂溶性の色素であるスダンIIIやアリズリンパープルは、ホストがPVP/ラポナイトの場合は吸着しなかった。このことから、水溶性のビオラミンRは水溶性高分子であるPVP層に共吸着されていることが示唆された。

【0062】

実施例 6 ((スダンIII/ラポナイト)/PDPA) 5 /合成フッ素金雲母

基盤粉体として合成フッ素金雲母を用い、実施例 1 と同様にして、5%のPDPA水溶液中に合成フッ素金雲母を重量比でPDPA:合成フッ素金雲母=1:1になるような割合で添加し、攪拌混合後、ろ過洗浄を行い、PDPA/合成フッ素金雲母を得た。このPDPA/合成フッ素金雲母を上記のスダンIII/ラポナイト複合粉体をゲル化しない程度の濃度に調整した水分散体に添加し、攪拌混合後、ろ過、水洗を行い、(スダンIII/ラポナイト)/PDPA/合成フッ素金雲母を得た。さらに、さらに上記のPDPA被覆工程からの一連の工程を5回行い5層構造の((スダンIII/ラポナイト)/PDPA) 5 /合成フッ素金雲母を得た。

【0063】

実施例 7 ((アリズリンパープル/ラポナイト)/PDDA) 5 /合成フッ素金雲母

実施例 6 と同様にして、上記アリズリンパープル/ラポナイト複合粉体を用い、((アリズリンパープル/ラポナイト)/PDDA) 5 /合成フッ素金雲母を得た。

**【0064】**実施例 8 ((クロロフィルa/ラポナイト)/PDDA) 5 /合成フッ素金雲母

実施例 6 と同様にして、上記クロロフィルa/ラポナイト複合粉体を用い、((クロロフィルa/ラポナイト)/PDDA) 5 /合成フッ素金雲母を得た。

**【0065】**実施例 9 ((ビオラミンR/ラポナイト)/PDDA) 5 /合成フッ素金雲母

実施例 6 と同様にして、上記ビオラミンR/ラポナイト複合粉体を用い、((ビオラミンR/ラポナイト)/PDDA) 5 /合成フッ素金雲母を得た。

**【0066】**実施例 10 ((ビオラミンR/PVP/ラポナイト)/PDDA) 5 /合成フッ素金雲母

実施例 6 と同様にして、上記ビオラミンR/PVP/ラポナイト複合粉体を用い、((ビオラミンR/PVP/ラポナイト)/PDDA) 5 /合成フッ素金雲母を得た。

**【0067】**

以上のようにして得られた、実施例 8 の((クロロフィルa/ラポナイト)/PDDA) 5 /合成フッ素金雲母、実施例 9 の((ビオラミンR/ラポナイト)/PDDA) 5 /合成フッ素金雲母、及び実施例 10 の((ビオラミンR/PVP/ラポナイト)/PDDA) 5 /合成フッ素金雲母に関して、化粧品専門パネルによる官能評価をそれらを配合したパウダリーファンデーションの系で行った。配合処方を表 7 に、評価結果を表 8 に示す。なお、官能評価の評価内容は以下の通りである。

**【0068】**

透明感・明るさ：20名の女性パネラーに試料を塗布し、仕上がりの透明感、明るさについて評価した。

- ◎ 17名以上が良いと回答
- 12名～16名
- △ 9名～11名
- × 5名～8名

×× 4名以下

【0069】

【表7】

	配合例 4	配合例 5	配合例 6	比較例 3
((ビ°ラミンR/ラホ°ナイト)/PDDA) 5	30	—	—	—
/合成フッ素金雲母複合体				
((クロフィルa/ラホ°ナイト)/PDDA) 5	—	30	—	—
/合成フッ素金雲母複合体				
((ビ°ラミンR/PVP/ラホ°ナイト)/PDDA) 5	—	—	30	—
/合成フッ素金雲母複合体				
合成フッ素金雲母	—	—	—	30
タルク	TO 100	TO 100	TO 100	TO 100
二酸化チタン	10.5	10.5	10.5	10.5
微粒子二酸化チタン	5	5	5	5
酸化鉄赤	0.8	0.8	0.8	0.8
酸化鉄黄	2	2	2	2
酸化鉄黒	0.1	0.1	0.1	0.1
球状ナイロンパウダー	3	3	3	3
球状シリコーンパウダー	5	5	5	5
流動パラフィン	4	4	4	4
ジメチコン	4	4	4	4
ソルビ°タンセスキソステアレート	0.8	0.8	0.8	0.8
パラベン	適量	適量	適量	適量
酸化防止剤	適量	適量	適量	適量
香料	適量	適量	適量	適量

(製法) 処方中の粉末成分と油相成分をヘンシェルミキサーにて混合し、パールペライザーで2回粉碎した後、容器(樹脂製中皿)内に充填し、公知の方法で乾式プレス成型した。

【0070】

【表 8】

	透明感・明るさ
配合例 4	○
配合例 5	○
配合例 6	○
比較例 3	×

以上の結果より、予め水膨潤性粘土鉱物と有機色素とを複合化した複合粉体を用いるか、又は水膨潤性粘土鉱物層間に水溶性高分子をインターカレートし有機色素を共吸着させた複合粉体を基盤粉体上に積層することにより、粉体の色を容易に調整することができ、且つ化粧品に配合した場合に優れた仕上がりの透明感、明るさを付与することが可能となることが見出された。

## 【0071】

以下、本発明にかかる積層粉体について、他の好適な配合例を示すが、本発明はこれにより制限されるものではない。

## 配合例 7 両用ファンデーション

(1) シリコーン処理タルク	To 100
(2) シリコーン処理セリサイト	20.0
(3) シリコーン処理マイカ	10.0
(4) シリコーン処理酸化チタン	10.0
(5) シリコーン処理ベンガラ	0.8
(6) シリコーン処理黄酸化鉄	3.0
(7) シリコーン処理黒酸化鉄	0.2
(8) (グリセリン/ラポナイト)/PDDA/白雲母	10.0
(9) 流動パラフィン	4.0
(10) ワセリン	4.0
(11) ソルビタンセスキイソステアレート	0.8
(12) 防腐剤	適量
(13) 酸化防止剤	適量

## (14) 香料

適 量

(製法) 処方中の粉末成分と油相成分をヘンシェルミキサーにて混合し、パルペライザーで2回粉碎した後、容器（樹脂製中皿）内に充填し、公知の方法で乾式プレス成型した。

## 【0072】

## 配合例8 両用ファンデーション

(1) シリコーン処理タルク	To 100
(2) シリコーン処理セリサイト	20.0
(3) シリコーン処理マイカ	10.0
(4) シリコーン処理酸化チタン	10.0
(5) シリコーン処理ベンガラ	0.8
(6) シリコーン処理黄酸化鉄	3.0
(7) シリコーン処理黒酸化鉄	0.2
(8) (PVP/ラポナイト)/PDPA/白雲母	10.0
(9) 流動パラフィン	4.0
(10) ワセリン	4.0
(11) ソルビタンセスキイソステアレート	0.8
(12) 防腐剤	適 量
(13) 酸化防止剤	適 量
(14) 香料	適 量

(製法) 配合例7と同様にして製造した。

## 【0073】

## 配合例9 両用ファンデーション

(1) シリコーン処理タルク	To 100
(2) シリコーン処理セリサイト	20.0
(3) シリコーン処理マイカ	10.0
(4) シリコーン処理酸化チタン	10.0
(5) シリコーン処理ベンガラ	0.8
(6) シリコーン処理黄酸化鉄	3.0

(7) シリコーン処理黒酸化鉄	0.2
(8) 2C18/ラポナイト/PDDA/合成フッ素金雲母	20.0
(9) 流動パラフィン	4.0
(10) ワセリン	4.0
(11) ソルビタンセスキイソステアレート	0.8
(12) 防腐剤	適量
(13) 酸化防止剤	適量
(14) 香料	適量

(製法) 配合例 7 と同様にして製造した。

#### 【0074】

##### 配合例 10 両用ファンデーション

(1) シリコーン処理タルク	To 100
(2) シリコーン処理セリサイト	20.0
(3) シリコーン処理酸化チタン	10.0
(4) シリコーン処理ベンガラ	0.8
(5) シリコーン処理黄酸化鉄	3.0
(6) シリコーン処理黒酸化鉄	0.2
(7) (ビオラミンR/ラポナイト)/PDDA/	30.0

##### 合成フッ素金雲母

(8) 流動パラフィン	4.0
(9) ワセリン	4.0
(10) ソルビタンセスキイソステアレート	0.8
(11) 防腐剤	適量
(12) 酸化防止剤	適量
(13) 香料	適量

(製法) 配合例 7 と同様にして製造した。

#### 【0075】

##### 配合例 11 おしろい

(1) マイカ	10.0
---------	------

(2) タルク	to 100
(3) 酸化亜鉛	5.0
(4) 微粒子酸化チタン	3.0
(5) 2C18/ラポナイト/PDDA/合成フッ素金雲母	10.0
(6) ワセリン	1.0
(7) スクワラン	2.0
(8) エステル油	1.0
(9) 防腐剤	適量
(10) 酸化防止剤	適量
(11) 香料	適量

(製法) 処方中の粉末成分と油相成分をヘンシェルミキサーにて混合し、パールライザーで2回粉碎した後、容器（樹脂製中皿）内に充填し、公知の方法で乾式プレス成型した。

#### 【0076】

##### 配合例 12 おしろい

(1) マイカ	10.0
(2) タルク	to 100
(3) 酸化亜鉛	5.0
(4) 微粒子酸化チタン	3.0
(5) (PVP/ラポナイト)/PDDA/白雲母	10.0
(6) ワセリン	1.0
(7) スクワラン	2.0
(8) エステル油	1.0
(9) 防腐剤	適量
(10) 酸化防止剤	適量
(11) 香料	適量

(製法) 配合例 11 と同様にして製造した。

#### 【0077】

##### 配合例 13 おしろい



(1) マイカ	10.0
(2) タルク	to 100
(3) 酸化亜鉛	5.0
(4) 微粒子酸化チタン	3.0
(5) (ビオラミンR/ラポナイト)/PDDA/	10.0
合成フッ素金雲母	
(6) ワセリン	1.0
(7) スクワラン	2.0
(8) エステル油	1.0
(9) 防腐剤	適量
(10) 酸化防止剤	適量
(11) 香料	適量

(製法) 配合例 11 と同様にして製造した。

### 【0078】

#### 配合例 14 おしろい

(1) マイカ	10.0
(2) タルク	to 100
(3) 酸化亜鉛	5.0
(4) 微粒子酸化チタン	3.0
(5) (グリセリン/ラポナイト)/PDDA/PMMA	10.0
(6) ワセリン	1.0
(7) スクワラン	2.0
(8) エステル油	1.0
(9) 防腐剤	適量
(10) 酸化防止剤	適量
(11) 香料	適量

(製法) 配合例 11 と同様にして製造した。

### 【0079】

#### 配合例 15 プレメークローション

## 油相部

(1) デカメチルシクロペンタシロキサン T o 100

(2) ポリエーテル変性シリコーン 3.0

(3) (ビオラミンR/PVP/ラポナイト)/PDPA/ 10.0

合成フッ素金雲母 (シリコーン処理)

(4) トリメチルシロキシケイ酸 2.0

---

## 水相部

(5) 1,3-ブチレングリコール 5.0

(6) ダイナマイトグリセリン 2.0

(7) 防腐剤 0.5

(8) 精製水 30.0

---

(製法) 70℃に加熱した油相部に水相部を添加して乳化機により十分に乳化する。乳化後、かき混ぜながら冷却し、35℃以下になったところで容器に流し込み放冷して、目的とするプレエマルジョンを得た。

## 【0080】

## 配合例 16 プレエマルジョン

## 油相部

(1) デカメチルシクロペンタシロキサン T o 100

(2) ポリエーテル変性シリコーン 3.0

(3) (グリセリン/ラポナイト)/合成フッ素金雲母 10.0

(シリコーン処理)

(4) トリメチルシロキシケイ酸 2.0

---

## 水相部

(5) 1,3-ブチレングリコール 5.0

(6) ダイナマイトグリセリン 2.0

(7) 防腐剤 0.5

(8) 精製水 30.0

---

(製法) 配合例 15 と同様にして製造した。

## 【0081】

配合例 17 アイシャドー	重量%
(1) タルク	To 100
(2) セリサイト	7.0
(3) マイカ	15.0
(4) 球状PMMA粉末	3.0
(5) (PVP/ラポナイト)/PDDA/白雲母	10.0
(6) 硫酸バリウム	4.0
(7) 酸化鉄	1.5
(8) スクワラン	2.0
(9) ジメチルポリシロキサン	2.0
(10) モノオレイン酸ソルビタン	0.5
(11) 防腐剤	適量
(12) 香料	適量

(製法) 処方中の粉末成分と油相成分をヘンシェルミキサーにて混合し、パールペライザーで2回粉碎した後、容器(樹脂製中皿)内に充填し、公知の方法で乾式プレス成型した。

### 【0082】

配合例 18 油性スティック	
(1) カルナバロウ	1.0
(2) キャンデリラロウ	2.0
(3) セレシン	10.0
(4) スクワラン	To 100
(5) トリイソオクタン酸グリセリン	9.0
(6) ジイソステアリン酸グリセリン	13.0
(7) ジメチルポリシロキサン	5.0
(粘度: 90,000mpa·s at 25℃)	
(8) ジメチルポリシロキサン	5.0
(粘度: 1,000mpa·s at 25℃)	
(9) シリコーン樹脂	8.0

(10) ヒドロキシプロピルーβ-シクロデキストリン	1. 0
(11) マカデミアナッツ油脂肪酸コレステリル	3. 5
(12) 合成ケイ酸ナトリウムマグネシウム	0. 5
(13) 疎水性シリカ	0. 5
(14) 精製水	2. 0
(15) 球状シリコーン樹脂粉末被覆マイカ	3. 0
(16) 2C18/ラポナイト/PDDA/合成フッ素金雲母	5. 0
(17) 硫酸バリウム	3. 0
(18) 色剤	適 量
(19) 防腐剤	適 量
(20) 香料	適 量

60℃に加熱した11に12～13を分散させ、これに均一溶解した10と14を加えて十分に攪拌する。別に加熱溶解させておいた1～9に、これを加えて十分攪拌し、さらに15～20を加えて分散攪拌し、その後容器に充填して油性スティックを得た。

### 【0083】

#### 配合例19 クリーム

##### 油相部

(1) デカメチルシクロペンタシロキサン	10. 5
(2) ジメチルポリシロキサン (6CS/25℃)	4. 0
(3) ステアリルアルコール	1. 5
(4) ワセリン	5. 0
(5) スクワラン	1. 0
(6) ビタミンEアセテート	0. 01
(7) (グリセリン/ラポナイト)/PDDA/白雲母	5. 0
(8) ポリエーテル変性シリコーン	2. 0

##### 水相部

(9) 防腐剤	0. 2
(10) 1, 3-ブチレングリコール	17. 0

(11) 精製水To 100

(製法) 油相部を 70℃ に加熱、攪拌後、粉末部を添加後、70℃ でホモミキサーで攪拌分散し、室温まで冷却し、水相添加後、ホモミキサーで乳化して、クリームを調製した。

**【0084】**配合例 20 日焼け止めローション

## 油相部

(1) ジメチルポリシロキサン (6CS/25℃)	5.0
(2) ジメチルポリシロキサン (1.5CS/25℃)	13.0
(3) フェニル変性メチルフェニルポリシロキサン	3.0
(4) ((ビオラミンR/ラポナイト)/PDDA)5/	5.0

二酸化チタン被覆雲母 (赤系干渉色)

(5) ポリエーテル変性シリコーン	2.0
-------------------	-----

## 水相部

(6) 塩化ナトリウム	9.0
(7) 香料	0.2
(8) 防腐剤	0.2
(9) エタノール	5.0

(10) 精製水To 100

(製法) 油相部を 70℃ に加熱、攪拌後、粉末部を添加後、70℃ でホモミキサーで攪拌分散し、室温まで冷却し、水相添加後、ホモミキサーで乳化して、日焼け止めローションを調製した。

**【0085】**配合例 21 液状乳化型ファンデーション

## 油相部

(1) デカメチルシクロペンタシロキサン	To 100
(2) トリメチルシロキシケイ酸	3.0
(3) ジメチルポリシロキサン	5.0
(4) ジメチルポリシロキサン	2.5

## ポリオキシアルキレン共重合体

(5) セスキソステアリン酸ソルビタン	2. 0
<hr/>	
粉体部	
(6) シリコーン処理タルク	5. 0
(7) シリコーン処理二酸化チタン	5. 0
(8) ((ビオラミンR/PVP/ラポナイト)/PDDA) <sub>5</sub> /	5. 5
二酸化チタン	
(9) シリコーン処理ナイロンパウダー	4. 0
(10) シリコーン処理着色顔料	2. 0
<hr/>	
水相部	
(11) 1, 3-ブチレングリコール	3. 0
(12) エタノール	13. 0
(13) 精製水	10. 0

(製法) 油相部を70℃に加熱、攪拌後、粉末部を添加後、70℃でホモミキサーで攪拌分散し、室温まで冷却し、水相添加後、ホモミキサーで乳化して、液状ファンデーションを調製した。

## 【0086】

<hr/>	
配合例 2.2 クリーム状乳化型ファンデーション	
<hr/>	
油相部	
(1) デカメチルシクロペンタシロキサン	To 100
(2) トリメチルシロキシケイ酸	3. 0
(3) ジメチルポリシロキサン	5. 0
(4) セスキソステアリン酸ソルビタン	2. 0
(5) ジメチルポリシロキサン	3. 5
ポリオキシアルキレン共重合体	
(6) ジメチルステアリルアンモニウムヘクトライト	2. 0
<hr/>	
粉体部	
(7) シリコーン処理タルク	5. 0
(8) シリコーン処理二酸化チタン	5. 0

(9) ((クロロフィルa/ラポナイト)/PDDA) <sub>5</sub> / 合成フッ素金雲母	5. 5
(10) シリコーン処理ナイロンパウダー	4. 0
(11) シリコーン処理着色顔料	2. 0
<hr/>	
水相部	
(12) 1,3-ブチレングリコール	3. 0
(13) エタノール	20. 0
(14) 精製水	20. 0
<hr/>	

(製法) 油相部を70℃に加熱、攪拌後、粉末部を添加後、70℃でホモミキサーで攪拌分散し、室温まで冷却し、水相添加後、ホモミキサーで乳化して、クリーム状ファンデーションを調製した。

#### 【0087】

##### 【発明の効果】

本発明によれば、基盤となる粉体表面に、高分子電解質との静電的相互作用により、水膨潤性粘土鉱物を均一に積層した水膨潤性粘土鉱物積層粉体を得られ、さらに得られた積層粉体表面上の粘土鉱物に、吸着やインターカレートといった種々の処理を施すことで、様々な機能性を基盤粉体に付与することが可能となり、また、それらを化粧料に配合することで、化粧料の使用性や仕上がり等を向上させることができる。

##### 【図面の簡単な説明】

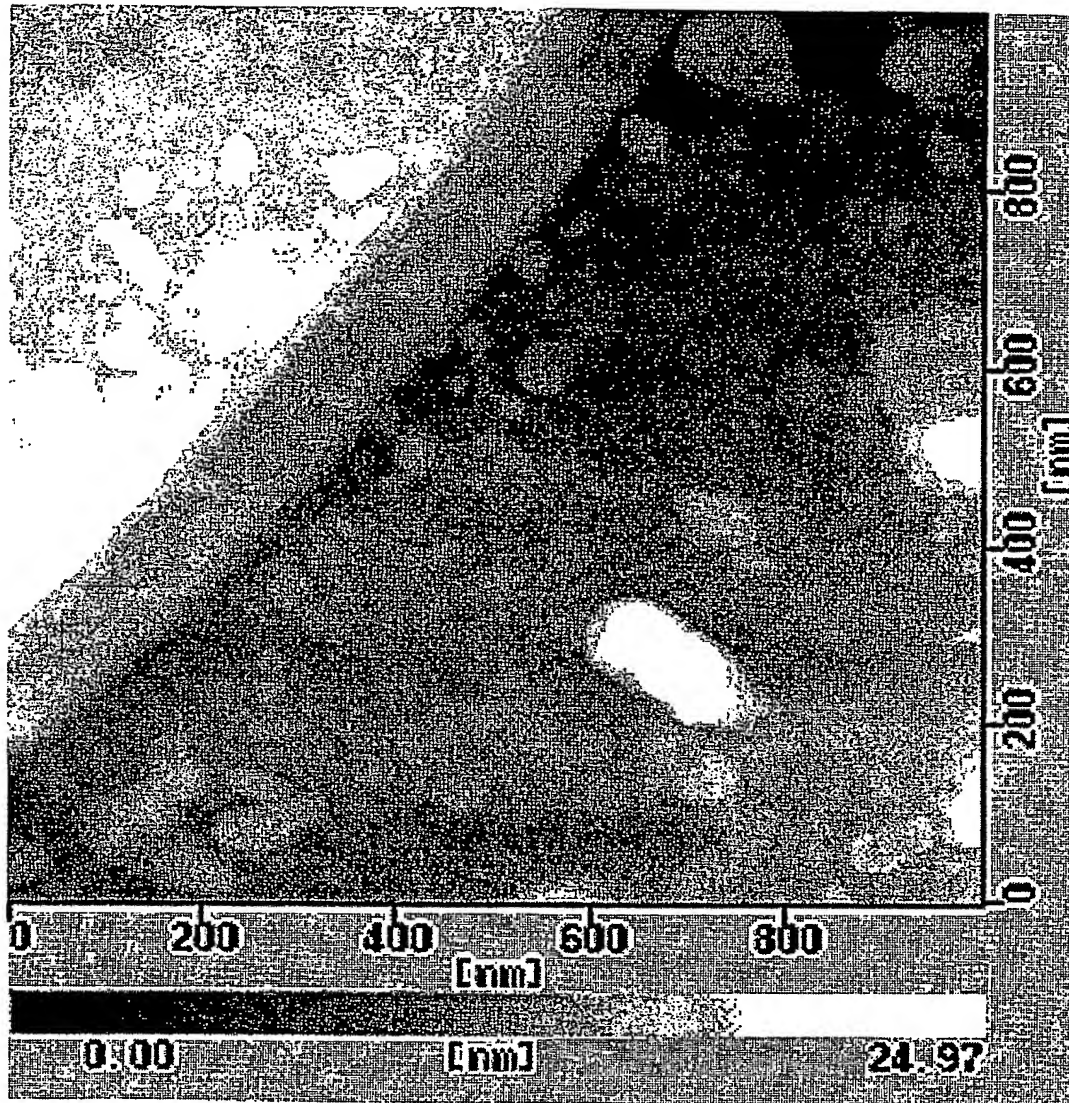
【図1】 合成フッ素金雲母のDFM映像である。

【図2】 PDPA／合成フッ素金雲母のDFM映像である。

【図3】 本発明の一実施例にかかるラポナイト／PDPA／合成フッ素金雲母のDFM映像である。

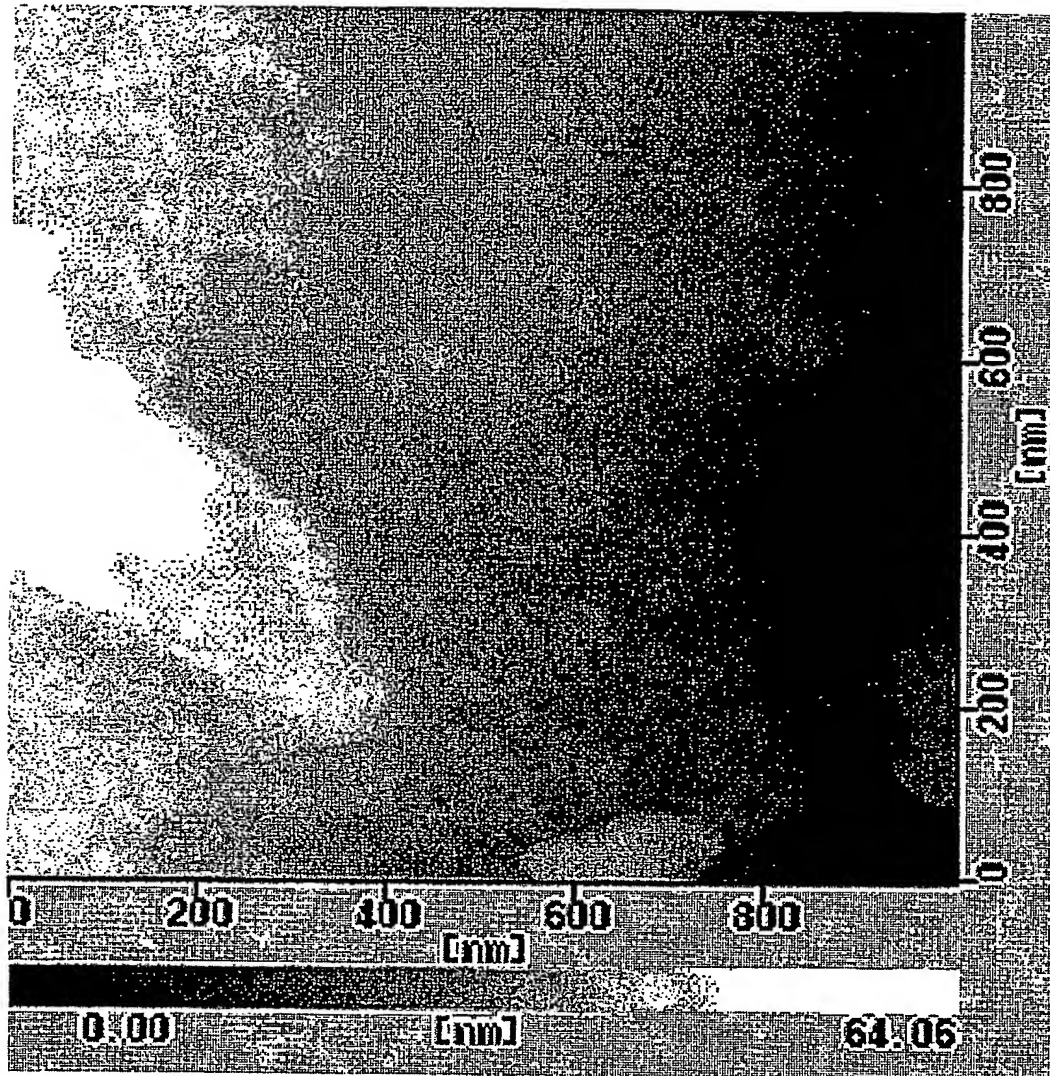
【書類名】 図面

【図 1】

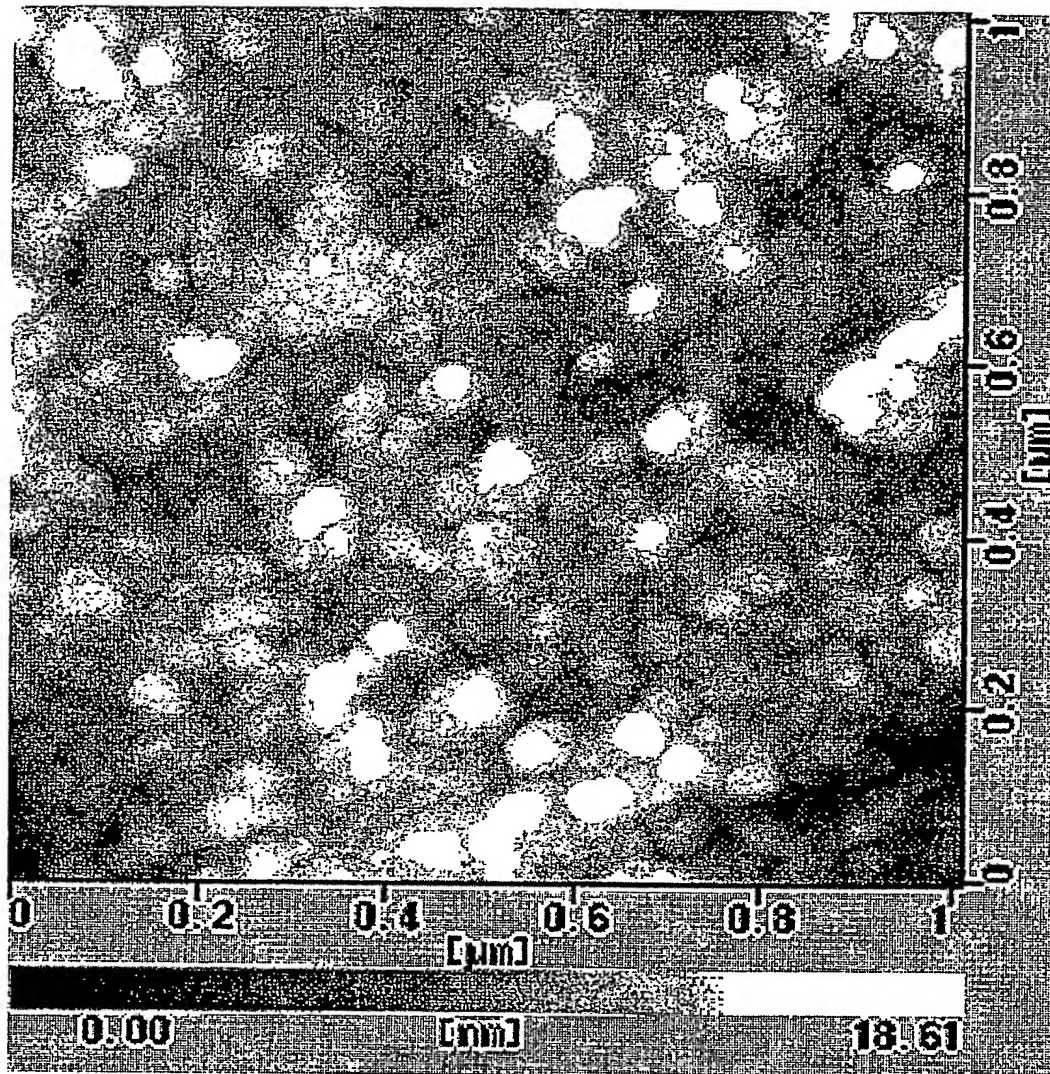




【図 2】



【図 3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 基盤となる粉体表面上に水膨潤性粘土鉱物を積層することによって、粉体表面上への機能性の付与が容易な水膨潤性粘土鉱物積層粉体、及びこれを配合した化粧料を提供する。

【解決手段】 基盤となる粉体粒子表面上にイオン性官能基を 2 以上有するイオン性分子からなる層が積層され、その上に水膨潤性粘土鉱物からなる層が積層された積層粉体であって、各層における表面電荷又はイオン電荷が正負交互になるよう連続的に積層されていることを特徴とする水膨潤性粘土鉱物積層粉体。

【選択図】 なし

特願 2003-002623

出願人履歴情報

識別番号

[000001959]

1. 変更年月日

1990年 8月27日

[変更理由]

新規登録

住所

東京都中央区銀座7丁目5番5号

氏名

株式会社資生堂